

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 2002208430  
PUBLICATION DATE : 26-07-02 ✓

APPLICATION DATE : 10-01-01  
APPLICATION NUMBER : 2001003010

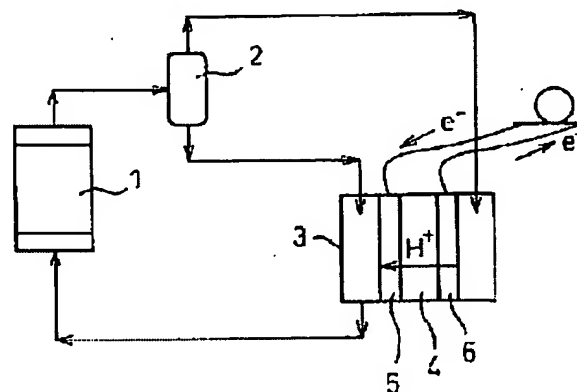
図 1

APPLICANT : RIKOGAKU SHINKOKAI;

INVENTOR : KATO YUKITAKA;

INT.CL. : H01M 8/18 H01M 8/00 H01M 8/04

TITLE : FUEL CELL POWER GENERATING SYSTEM



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a fuel cell system which can continuously generate electric power in a closed system using hydrogen repeatedly without the need to supply hydrogen newly.

SOLUTION: The fuel cell power generating system consists of (a) a dehydrogenation reactor which generates dehydrogenating compound and hydrogen by dehydrogenating a dehydrogenated compound; (b) a hydrogen separator which separates the generated dehydrogenating compound and hydrogen; and (c) a fuel cell which contains an anode electrode supplied with hydrogen, electrolyte, and a cathode electrode supplied with a dehydrogenating compound, and also generates electric power, as well as generates dehydrogenated compound from the dehydrogenating compound and hydrogen by a dehydrogenating compound hydrogenation reaction.

COPYRIGHT: (C)2002,JPO

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2002-208430  
(P2002-208430A)

(43) 公開日 平成14年7月26日 (2002.7.26)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	ターム(参考)
H 0 1 M	8/18	H 0 1 M	8/18
	8/00		8/00
	8/04		8/04
			Z
			J

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願2001-3010(P2001-3010)

(22) 出願日 平成13年1月10日 (2001.1.10)

(71) 出願人 899000013

財団法人 理工学振興会

東京都目黒区大岡山 2-12-1

(72) 発明者 加藤 之貴

東京都目黒区大岡山 2-12-1 東京工業  
大学内

(74) 代理人 100077517

弁理士 石田 敬 (外 4 名)

Fターム(参考) 5H026 AA08 AA09 EE17

5H027 AA08 BA13 BA16 DD05

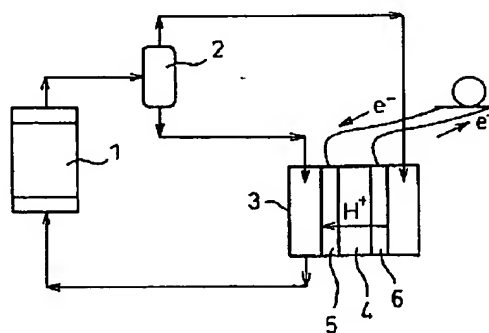
(54) 【発明の名称】 燃料電池発電システム

(57) 【要約】

【課題】 水素を閉鎖系で繰り返し使用し得、新たな水素を供給しないで連続的な発電が可能な燃料電池システムを提供する。

【解決手段】 (a) 被脱水素化合物を脱水素して脱水素化合物および水素を生成する脱水素反応器；(b) 生成した脱水素化合物および水素を分離する水素分離器；ならびに(c) 水素を供給されるアノード極、電解質、ならびに脱水素化合物を供給されるカソード極を含み、電力を発生するとともに、脱水素化合物水素化反応により脱水素化合物および水素から被脱水素化合物を生成する燃料電池、より構成されてなる燃料電池発電システム。

図 1



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) 被脱水素化合物を脱水素して脱水素化合物および水素を生成する脱水素反応器；(b) 生成した脱水素化合物および水素を分離する水素分離器；ならびに(c) 水素を供給されるアノード極、電解質、ならびに脱水素化合物を供給されるカソード極を含み、電力を発生するとともに、脱水素化合物水素化反応により脱水素化合物および水素から被脱水素化合物を生成する燃料電池、より構成されてなる燃料電池発電システム。

【請求項2】 被脱水素化合物を脱水素して脱水素化合物および水素を生成させ、ついで生成した脱水素化合物および水素を分離し、分離した脱水素化合物および水素をそれぞれ燃料電池のカソード極およびアノード極に供給し、電力を発生させるとともに、脱水素化合物水素化反応により脱水素化合物および水素から被脱水素化合物を生成させ、これを前記の被脱水素化合物の脱水素に供することを特徴とする燃料電池発電方法。

【請求項3】 (a) シクロヘキサンを脱水素してベンゼンおよび水素を生成するシクロヘキサン脱水素反応器；(b) 生成したベンゼンおよび水素を分離する水素分離器；ならびに(c) 水素を供給されるアノード極、電解質、ならびにベンゼンを供給されるカソード極を含み、電力を発生するとともに、ベンゼン水素化反応によりベンゼンおよび水素からシクロヘキサンを生成する燃料電池、より構成されてなる燃料電池発電システム。

【請求項4】 シクロヘキサンを脱水素してベンゼンおよび水素を生成させ、ついで生成したベンゼンおよび水素を分離し、分離したベンゼンおよび水素をそれぞれ燃料電池のカソード極およびアノード極に供給し、電力を発生させるとともに、ベンゼン水素化反応によりベンゼンおよび水素からシクロヘキサンを生成させ、これを前記のシクロヘキサン脱水素に供することを特徴とする燃料電池発電方法。

【請求項5】 (a) イソプロパノールを脱水素してアセトンおよび水素を生成する脱水素反応器；(b) 生成したアセトンおよび水素を分離する水素分離器；ならびに(c) 水素を供給されるアノード極、電解質、ならびにアセトンを供給されるカソード極を含み、電力を発生するとともに、アセトン水素化反応によりアセトンおよび水素からイソプロパノールを生成する燃料電池、より構成されてなる燃料電池発電システム。

【請求項6】 イソプロパノールを脱水素してアセトンおよび水素を生成させ、ついで生成したアセトンおよび水素を分離し、分離したアセトンおよび水素をそれぞれ燃料電池のカソード極およびアノード極に供給し、電力を発生させるとともに、アセトン水素化反応によりアセトンおよび水素からイソプロパノールを生成させ、これを前記のイソプロパノール脱水素に供することを特徴とする燃料電池発電方法。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料発電システムおよび燃料電池発電方法に関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池は、発電効率が高く、地球環境の観点からも優れているため、種々の用途に使用できる将来有望な発電システムとして期待されている。この燃料電池は、天然ガス、メタノール、石炭などの燃料を改質して得られる水素と、空気中の酸素から電気エネルギーを得るものであり、電池自体は省エネルギー性が高い。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、燃料電池では、連続的に電池に水素を供給する必要があるため、このためのエネルギーの低減が望まれている。そこで、本発明者は水素を閉鎖系で繰り返し使用し得、新たな水素を供給しないで連続的な発電が可能な燃料電池を得るべく種々検討を行い、本発明に到達した。

【0004】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明の要旨は、(a) 被脱水素化合物を脱水素して脱水素化合物および水素を生成する脱水素反応器；(b) 生成した脱水素化合物および水素を分離する水素分離器；ならびに(c) 水素を供給されるアノード極、電解質、ならびに脱水素化合物を供給されるカソード極を含み、電力を発生するとともに、脱水素化合物水素化反応により脱水素化合物および水素から被脱水素化合物を生成する燃料電池、より構成されてなる燃料電池発電システム、さらには被脱水素化合物を脱水素して脱水素化合物および水素を生成させ、ついで生成した脱水素化合物および水素を分離し、分離した脱水素化合物および水素をそれぞれ燃料電池のカソード極およびアノード極に供給し、電力を発生させるとともに、脱水素化合物水素化反応により脱水素化合物および水素から被脱水素化合物を生成させ、これを前記の被脱水素化合物の脱水素に供することを特徴とする燃料電池発電方法、にある。

【0005】本発明の燃料電池発電システムは、このような構成をとることにより水素燃料を連続的に供給することなく、閉鎖系で燃料電池を駆動し、消費した水素は比較的低温の熱のみにより連続的に再生されるので、再発電が可能である。このシステムは省エネルギー性、環境性の高い燃料電池発電システムを提供する。本発明において、上記の被脱水素化合物としてはシクロヘキサン、イソプロパノール等が好適に使用される。すなわち、本発明燃料電池発電システムの第1の好適な態様は、(a) シクロヘキサンを脱水素してベンゼンおよび水素を生成するシクロヘキサン脱水素反応器；(b) 生成したベンゼンおよび水素を分離する水素分離器；ならびに(c) 水素を供給されるアノード極、電解質、なら

びにベンゼンを供給されるカソード極を含み、電力を発生するとともに、ベンゼン水素化反応によりベンゼンおよび水素からシクロヘキサンを生成する燃料電池、より構成されてなる燃料電池発電システムを要旨とする。

【0006】さらに本発明燃料電池発電システムの第2の好適な態様は、(a) イソプロパノールを脱水素してアセトンおよび水素を生成する脱水素反応器；(b) 生成したアセトンおよび水素を分離する水素分離器；ならびに(c) 水素を供給されるアノード極、電解質、ならびにアセトンを供給されるカソード極を含み、電力を発生するとともに、アセトン水素化反応によりアセトンおよび水素からイソプロパノールを生成する燃料電池、より構成されてなる燃料電池発電システムを要旨とする。

【0007】

【発明の実施の形態】以下、本発明を図面とともに詳細に説明する。図1は、本発明の燃料電池発電システムについて第1の好適な態様(シクロヘキサン/ベンゼン/水素系)の一例を模式的に示す。さらに、図2は、図1における燃料電池部分の詳細を示す。本発明の燃料電池発電システムは、シクロヘキサン脱水素反応器(1)、水素分離器(2)および燃料電池(3)で構成される。シクロヘキサンが、白金、パラジウム、ニッケル等の金属触媒もしくは酸化クロム、アルミナ等の酸化物触媒、等の脱水素触媒を有する脱水素反応器(1)に導入され、約300℃で吸熱分解されてベンゼンおよび水素を生成する( $C_6H_{12} \rightarrow C_6H_6 + 3H_2$ )。ついで、生成したベンゼンおよび水素は水素分離器(2)に導入され、ベンゼンと水素に分離される。水素分離器(2)は、凝縮器であり、冷却温度は好適には約30℃である。分離されたベンゼンは燃料電池(3)のカソード極側(通常の燃料電池の空気極側に対応する)に、そして水素はアノード極側(通常の燃料電池の燃料極側に対応する)に供給される。燃料電池(3)は、カソード極、電解質層(4)およびアノード極を含み、カソード極およびアノード極はそれぞれカソード極触媒層(5)およびアノード極触媒層(6)を電解質側に有する。これらの触媒層はいずれも触媒としての白金担持活性炭および撥水材としてのPTFE(ポリテトラフルオロエチレン)膜により構成されている。電解質層(4)にはリン酸含浸炭化ケイ素が用いられ、電解質のリン酸としてポリリン酸が用いられている。アノード極側に導入された水素は、アノード触媒表面で電離する( $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ )。電子 $e^-$ は外部回路を流れ、電力が発生する。一方、水素イオ

ン $H^+$ (プロトン)は電解質内を移動してカソード極に到達する。このカソード極では、約100℃でベンゼンがプロトンおよび電子と結合し、ベンゼン水素化反応が発熱的に進行してシクロヘキサンが生成する。

【0008】 $C_6H_6 + 6H^+ + 6e^- \rightarrow C_6H_{12}$

生成したシクロヘキサンは、再度脱水素反応器(1)に導入され上述のように約300℃でベンゼンと水素に分解され、ついで水素分離器(2)および燃料電池(3)に循環し発電に供される。上述の態様においては、他の酸に比べて著しく蒸気圧が低いリン酸が電解質として使用されているが、固体高分子電解質、安定化ジルコニア等の固体電解質等も使用しうる。カソード極触媒およびアノード極触媒も上記のものに限定されず、公知のものを使用しうる。

【0009】上記のシクロヘキサン脱水素反応に必要な約300℃の熱は、エンジン類の排熱を利用することができる。たとえば、従来のコージェネレーションシステムで用いられる、ガスエンジン、ディーゼルエンジン、燃料電池、マイクロガスタービン等から発生する排気熱と同じ温度レベルであり、これらの排気熱を本発明の発電システムに利用しうる。一方、発電時には、上記のように約100℃の温熱も同時生成するので、この熱を別途、暖房もしくは冷房の熱源として有効に利用しうる。

【0010】図3は、プロセスシミュレータープログラム「ASPEN PLUS ver1.0.0」を用いて熱駆動システムとしての本発明発電システムの操作条件を検討した際のフローを示す。図3において、本発明の再生型燃料電池発電システムは、流路(14)で始まり水素分離器(2)、燃料電池(3)およびシクロヘキサン脱水素反応器(1)を経て流路(34)から流路(14)に戻り再循環するものである。上記の水素分離器として凝縮器が用いられ、大気圧、100kPaで操作される。この条件下で反応原料が反応して平衡組成に達するまで反応するとして熱力学的性能を評価した。流路(11)は流路(14)での流れ込み条件の初期値を設定するためのものであり、検討に影響を与えない。水素分離器(2)では入力条件に対し気液分離量を熱力学的に求めている。燃料電池(3)、脱水素反応器(1)は各入力条件に関して化学反応平衡量および気液平衡量を同時に求めている。その結果を表1に示す。

【0011】

【表1】

表1

燃料および物質収支												
ストリーム		11	14	15	18	17	22	23	24	32	33	34
温度	C	200.0	300.0	30.0	30.0	30.0	100.0		100.0	300.0		300.0
圧力	BAR	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
蒸気分率		1.000	1.000	1.000	0.000	0.777	1.000		1.000	1.000		1.000
モル流量	KMOL/HR	3.000	5.719	4.444	1.275	5.719	2.005	0.000	2.005	5.719	0.000	5.719
質量流量	KG/HR	164.291	164.564	64.679	99.835	164.564	164.566	0.000	164.566	164.571	0.000	164.571
容積流量	CUM/HR	117.415	272.420	111.841	0.116	112.057	60.680	0.000	60.680	272.428	0.000	272.426
エンタルピー	MMKCAL/HR	0.002	0.058	0.012	0.013	0.025	-0.022		-0.022	0.058		0.058
ベンゼン	KMOL/HR	1.000	1.904	0.682	1.222	1.904	0.666		0.666	1.904		1.904
水素	KMOL/HR	1.000	3.716	3.716	trade	3.716	0.001		0.001	3.716		3.716
シクロヘキサン	KMOL/HR	1.000	0.099	0.048	0.053	0.099	1.337		1.337	0.099		0.099

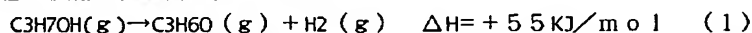
この結果、たとえば、シクロヘキサン脱水素反応は約300℃、燃料電池内の水素化反応は約100℃で可逆的に進行し、この際分離器(2)の冷却温度は約30℃

【0012】この燃料電池発電システムは、上述のとおり水素燃料を連続的に供給することなく、閉鎖系で燃料電池を駆動し、消費した水素は約300℃の熱のみにより連続的に再生されるので、省エネルギー性、環境性の高い燃料電池発電システムを提供する。さらに本発明においては、シクロヘキサンを脱水素してベンゼンおよび水素を生成させ、ついで生成したベンゼンおよび水素を分離し、分離したベンゼンおよび水素をそれぞれ燃料電池のカソード極およびアノード極に供給し、電力を発生さ

\* せるとともに、ベンゼン水素化反応によりベンゼンおよび水素からシクロヘキサンを生成させ、これを前記のシクロヘキサン脱水素に供する燃料電池発電方法を提供するものであることは上記のとおりである。

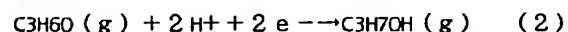
【0013】次に、本発明燃料電池発電システムの第2の好適な態様(イソプロパノール/アセトン/水素系)について説明する。この場合、第1の好適な態様とシクロヘキサン/ベンゼン/水素系がイソプロパノール/アセトン/水素系にかわり反応温度が異なるが、基本的に燃料電池構成は同様である。すなわち、反応式は次のとおりである。

【0014】



イソプロパノール脱水素反応(右方向)が吸熱反応、そしてアセトン水素化反応(左方向)が発熱反応である。燃料電池としてこの反応系を用いると、概ね100℃前後でアセトン水素化反応により発電し、200℃前後でイソプロパノール吸熱分解による水素再生が可能な再生型燃料電池システムを形成しうる。

【0015】アノード電極側には水素が、そしてカソード側にはアセトンが供給される。アノード電極においては、上述のような水素の電離反応が起こり、発生した電子を外回路に導通することで発電が行われる。一方、カソード電極においては、アセトン水素化反応が進行する。



生成したイソプロパノールは、200℃前後で再度脱水素すると、水素が再生する。この水素を再度燃料電池に循環することで連続的な発電が可能となる。したがって、脱水素反応器への200℃の吸熱反応熱の供給、および水素化が行われる燃料電池部で発生する100℃の水素化熱の除熱で燃料電池システムを連続的に運転する

ことができる。本発明は、このような燃料電池システムを提供するとともに、イソプロパノールを脱水素してアセトンおよび水素を生成させ、ついで生成したアセトンおよび水素を分離し、分離したアセトンおよび水素をそれぞれ燃料電池のカソード極およびアノード極に供給し、電力を発生させるとともに、アセトン水素化反応によりアセトンおよび水素からイソプロパノールを生成させ、これを前記のイソプロパノール脱水素に供する燃料電池発電方法を提供するものであることは上記より明らかであろう。

【0016】図4はこの反応温度域を示すために反応式(1)の反応平衡関係を示す。図1において、横軸は反応温度、縦軸はイソプロパノールの反応平衡量を示す。パラメーターは反応圧力であり、ここでは初期にイソプロパノール、アセトン、水素をそれぞれ1kmol/hr装入するとして計算されている。すなわち、アセトン水素化が完全に進むと、イソプロパノール量は2kmol/hrになり、イソプロパノール脱水素が完全に進むと、イソプロパノール量は0kmol/hrとなる。1

00℃前後ではイソプロパノール量が1.6前後と高い。したがって、この温度域でアセトン水素化反応が良好に進行するので発電が可能である。200℃前後では、イソプロパノール量は0.4程度と低い。すなわち、この温度域では、イソプロパノール脱水素反応が良好に進行することを示しているので、水素の再生が可能である。

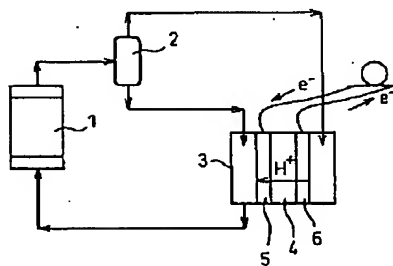
【0017】以上のとおり、本発明は水素を閉鎖系で繰り返し使用し得、新たな水素を供給しないで連続的な発電が可能な燃料電池システムならびに燃料電池発電方法

を提供する。

【図面の簡単な説明】  
【図1】本発明の燃料電池発電システムの好適な1態様を模式的に示す図である。

【図1】

図 1



\*【図2】図1における燃料電池部分の詳細を示す図である。

【図3】本発明の燃料電池発電システムにおける反応平衡計算を行うためのフローを示す図である。

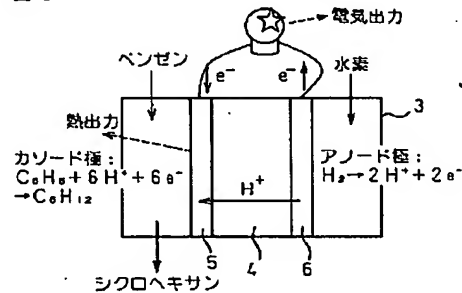
【図4】本発明の燃料電池発電システムの1態様における反応平衡関係を示す図である。

【符号の説明】

- 1…脱水素反応器
- 2…水素分離器
- 3…燃料電池
- 4…電解質層
- 5…カソード極触媒層
- 6…アノード極触媒層

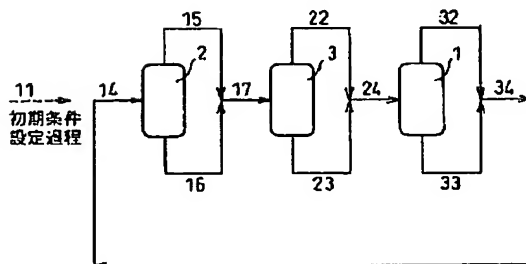
【図2】

図 2



【図3】

図 3



【図4】

